

# 氧化石墨烯(GO)及复合物制备及其对汞吸附特性的研究

田冲<sup>1,2</sup> Yuxi Liu<sup>3</sup> 余学海<sup>2,4</sup> Hongbo Zeng<sup>3</sup> 赵永椿<sup>2</sup> 张军营<sup>2</sup>

(1-武汉大学, 动力与机械学院, 湖北省 武汉市 430072;

2-华中科技大学煤燃烧国家重点实验室, 湖北省 武汉市 430074;

3-Department of Chemical and Material Engineering, University of Alberta, Edmonton AB, T6G 2V4, Canada;

4-神华集团国华(北京)电力研究院有限公司, 北京 100025 )

(联系电话: 027-87542417, Email: [ctian@hust.edu.cn](mailto:ctian@hust.edu.cn))

## 摘要:

以石墨粉(G)为原料, 通过化学方法制备了氧化石墨烯(GO)、纳米 Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub> 负载石墨烯复合材料(MGO)、纳米 Ag 颗粒修饰磁性氧化石墨烯(GO-Ag/MGO-Ag)四种吸附材料, 对材料进行了表征并考察了氧化石墨烯及其复合物对烟气中汞的吸附作用。研究表明四种石墨烯基吸附剂可被成功合成和表征; GO 在 100-150℃时对 Hg<sup>0</sup> 表现出优异的吸附性能, Ag-NPs 修饰 GO 能有效提升吸附剂对汞的吸附能力, MGO-Ag 复合吸附剂对汞的吸附能力最佳; MGO-Ag 在 150℃-200℃时表现出优异的汞吸附能力, 在反复循环之后吸附性能几乎不变; 以 MGO-Ag 为代表的可再生磁性石墨烯基复合吸附剂在中低温条件下对 Hg<sup>0</sup> 具有优异的吸附性能, 且能有效与飞灰进行分离, 具有良好的工业应用前景。

**关键词:** 氧化石墨烯; 汞吸附; 磁性; 纳米银颗粒; 再生循环;

**中图分类号:** TK123

**文献标识码:** A

## Fabrication of Graphene Oxide (GO)Based Nano-composites and the Applications in Hg<sup>0</sup> Adsorption

Chong Tian<sup>1,2</sup> Yuxi Liu<sup>3</sup> Xuehai Yu<sup>2,4</sup> Hongbo Zeng<sup>3</sup> Yongchun Zhao<sup>2</sup> Junying Zhang<sup>2</sup>

(1- School of Power and Mechanical Engineering, Wuhan University, Wuhan 430072, China;

2-State Key Laboratory of Coal Combustion, Wuhan 430074, China;

3-Department of Chemical and Material Engineering, University of Alberta, Edmonton AB, T6G 2V4, Canada;

4- Shenhua Group China (Beijing) Electric Power Research Institute Co., Ltd., Beijing 100025, China)

(Tel: 027-87542417, Email: [ctian@hust.edu.cn](mailto:ctian@hust.edu.cn))

## Abstract:

Nano-composites including graphene oxide(GO), ferri ferrous oxide nano particles (Fe-NPs) loading graphene oxide (MGO), nano silver particles (Ag-NPs) decorated GO and MGO (GO-Ag/MGO-Ag) were fabricated via facile chemical methods. All the four kinds of nano-composites were well characterized by advanced instruments, and were tested for their capability of Hg<sup>0</sup> adsorption in flue gas. The results indicated that the four kinds of nano-composites can be synthesized successfully by the facile chemical methods. GO show a

收稿日期: 2016-12-15;

国家重点基础研究发展规划(973)(No.2014CB238904); 国家自然科学基金 (Nos. 51506066,51376074);

第一作者简介: 田冲, (1985-), 男, 副研究员, 博士, 主要从事燃煤污染物控制研究;

通讯作者: 田冲, 副研究员, [ctian@hust.edu.cn](mailto:ctian@hust.edu.cn)

good  $\text{Hg}^0$  adsorption performance when the temperature is range from  $100^\circ\text{C}$  to  $150^\circ\text{C}$ , the Ag-NPs decorated GO can greatly enhance the  $\text{Hg}^0$  adsorption capability. MGO-Ag performances best of all the four composites on  $\text{Hg}^0$  adsorption. The optimum working temperature for MGO-Ag on  $\text{Hg}^0$  adsorption are about  $150^\circ\text{C}$ - $200^\circ\text{C}$ , and the MGO-Ag can be recycled after successive adsorption and desorption without any significance loss in adsorption performance. The recyclable nano-composites of MGO-Ag can be served as an excellent candidates for  $\text{Hg}^0$  adsorption under medium-low temperatures ( $100$ - $200^\circ\text{C}$ ). Further, the decoration of Fe-NPs helps for the separation of the materials and the fly ash in a real case of coal-fired power plants, which provides great advantages in practical applications.

**Key words:** Graphene oxide; Hg adsorption; Magnetic; Ag Nano Particles; Recyclable

## 0. 引言

燃煤电站 Hg 排放严重危害人类生存环境和人类健康<sup>[1, 2]</sup>, 尽管煤中 Hg 仅以微量元素的存在, 但长期大量使用煤炭必将导致 Hg 排放的积累效应<sup>[1-6]</sup>。中国煤中汞含量大约在  $0.2\mu\text{g/g}$ , 燃煤烟气中汞浓度一般为  $1$ - $20\mu\text{g/m}^3$ , 煤燃烧过程中, Hg 最初以元素形态( $\text{Hg}^0$ )释放, 但由于高温烟气中的热化学反应, 部分元素 Hg 可被氧化成  $\text{Hg}^{2+}$ , 部分 Hg 还可被飞灰颗粒捕获形成颗粒  $\text{Hg}(\text{Hg}_p)$ ,  $\text{Hg}^{2+}$ 具有水溶性,  $\text{Hg}_p$  可被静电除尘(ESP)和湿法脱硫系统(FGD)或者选择催化还原(SCR)系统脱除, 但燃煤烟气中仍有  $20$ - $50\%$  元素态汞存在。而  $\text{Hg}^0$  在系统中难以被脱除, 开发有效的吸附剂实现  $\text{Hg}^0$  的脱除意义重大<sup>[7]</sup>。

对于  $\text{Hg}^0$  的控制, 目前常用的方法包括 SCR 对  $\text{Hg}^0$  氧化结合 WFGD 对  $\text{Hg}^{2+}$  吸收; 吸附剂喷射, 选用吸附剂包括碳基(如活性炭等), 非碳基(如矿石等), 但活性炭吸附剂成本太高, 无法循环使用; 且吸附剂喷入后难以与飞灰分离, 最终使飞灰成为汞汇, 影响飞灰品质; 开发高效经济吸附剂具有十分重要的意义, 其中可再生循环使用吸附剂开发在降低吸附剂成本具有明显意义, 磁性吸附剂最大优点是易于从飞灰中分离出来, 开发易与飞灰分离的磁性吸附剂, 并考察磁性吸附剂的再生利用技术, 成为当前研究热点。

近年来, 以石墨烯(G)为代表的碳纳米材料, 具有强大的比表面积和吸附能力, 已成为世界各国环境领域专家研究的热点。石墨烯具有严格的二位蜂巢结构, 其中碳原子以六次对称排列成一个二维平面, 和基本单元是材料中最稳定的苯六元环。G 自 2004 年被发现以来, 引起一阵研究热潮, 因其杰出的物理化学特性, 被广泛应用到各个领域。而石墨烯衍生物氧化石墨烯(GO)具有良好的水溶性和易改变的化学活性, 使得 GO 成为一种得天独厚的吸附材料。同时 GO 容易进行表面修饰, 使得在对其进行物

理化学改性修饰变得较为容易。当前研究表明, GO 在燃煤烟气中对汞的吸附性能研究不太完善。

本文以 GO 为吸附剂, 通过化学方法对 GO 进行功能修饰, 制备纳米银修饰磁性功能修饰吸附剂, 一方面考察以 GO 为基础的吸附剂在燃煤烟气中对汞的吸附能力, 另一方面开发 GO 表面功能化的磁性吸附剂, 考察其对燃煤烟气中汞的吸附能力及其再生与循环利用特性, 为开发高效可再生磁性吸附剂及其工业应用奠定基础。

## 1. 实验部分

### 1.1 实验原材料

GO 及其复合物制备的主要原材料主要包括: 石墨粉(粒径在  $7$ - $10\mu\text{m}$ ), 浓硫酸( $\text{H}_2\text{SO}_4$ ,  $95$ - $98\text{ wt.}\%$ ), 硝酸钠( $\text{NaNO}_3$ ), 双氧水( $\text{H}_2\text{O}_2$ ,  $29$ - $32\% \text{ W/W aq.}$ ), PVP(分子量  $58000$ ); 三价铁源  $\text{FeCl}_3 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ , 二价铁源  $\text{FeCl}_2 \cdot 4\text{H}_2\text{O}$ ; 高锰酸钾( $\text{KMnO}_4$ ), 氨水( $29.5\text{ wt.}\%$ ), 硝酸银( $\text{AgNO}_3$ )等, 实验所用所有化学药品均选用优级纯。

### 1.2 石墨烯及复合材料合成

通过改进 Hummers 方法制备氧化石墨烯(GO)<sup>[8]</sup>。在冰浴条件下在三口瓶中利用硫酸( $98\%$ )和石墨粉以及  $\text{NaNO}_3$  混合, 然后缓慢添加  $\text{KMnO}_4$ , 反应系统高速搅拌  $5$  天; 然后加入一定量的双氧水。随后在反应系统中逐滴加入含有  $500\text{mL}$  去离子水/浓硫酸( $\text{H}_2\text{SO}_4$ ,  $98\%$ )/双氧水( $\text{H}_2\text{O}_2$ ,  $30\text{ wt.}\%$ ), 此时悬浮颜色变为亮蓝色, 将悬浮液离心后利用去离子水反复洗涤, 并在  $2\text{L}$  去离子水中进行离子透析, 最后将得到的褐色粉末冻干后即得到蓬松的氧化石墨烯粉末(GO)。

根据银镜反应原理制备纳米 Ag 修饰 GO-Ag 复合材料<sup>[9]</sup>, 均相 GO 溶液( $0.5\text{mg/ml}$ )利用超声剥离  $45\text{min}$ , 剧烈搅拌条件下, 加入 PVP( $4\text{mg/mL}$ )和葡萄糖逐步加入到反应体系中; 然后将银氨溶液加入到

反应系统中, 调节反应温度至  $60^{\circ}\text{C}$  并保持 7min, 然后 GO-Ag 的复合物经过乙醇和去离子水反复洗涤后冻干, 将得到灰褐色的 GO-Ag 粉末样品。

利用共沉淀法制备磁性氧化石墨烯基复合吸附剂<sup>[10]</sup>, 配置  $\text{FeCl}_3$  和  $\text{FeCl}_2(2:1)$  溶液, 然后缓慢加入到超声 45min 的 GO 均相溶液中, 将反应温度调节至  $90^{\circ}\text{C}$ , 并通过添加 30% 氨水将反应体系 PH 值调节至 10, 剧烈搅拌 40min 后, 将反应体系温度冷却至室温, 利用磁铁将悬浮液中的黑色粉末从溶液中分离出来, 并利用去离子水反复洗涤, 干燥后及得到 MGO 样品。MGO-Ag 的制备重复 Go-Ag 制备方法进行。

### 1.3 复合材料表征

对石墨烯基复合物样品进行分别进行了 XRD、SEM、TEM 等测试。XRD 测试利用 Rigaku RU-200B 型 X 射线衍射仪( $\text{CuK}\alpha$ ), 发射级为 Cu, 发射参数为 40KV 和 110mA。SEM 和 TEM 测试在阿尔伯塔大学 ACSES 完成。SEM 在 JEOL JAMP 9500F Auger Microscope 上完成, TEM 在 Philips (FEI) CM 20TEM 上完成, 工作电压为 200 kV。

### 1.4 吸附剂脱汞实验

$\text{Hg}^0$  穿透实验台架如图, 实验系统图如图 1 所示。实验开始前, 精确称取 30mg 吸附剂置于 U 形管中, 并加塞石英棉, U 型管置于加热炉中, 设定加热炉温度以满足实验要求。实验载气为高纯 Ar, 流量为 40ml/min。实验过程中, 利用注射器精确抽取 200 $\mu\text{L}$  汞蒸汽通过聚四氟乙烯三通 1 和 2 注入, 实验过程中利用金捕汞管在常温下对系统中  $\text{Hg}^0$  捕获, 而后通过加热实现高温释放。 $\text{Hg}^0$  监测使用的是 Tekran2500 冷原子荧光(CVAFS)检测仪(检出限  $<0.1\text{pg Hg}^0$ )。

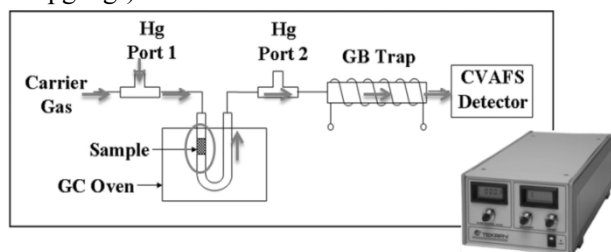


图 1.  $\text{Hg}^0$  穿透实验系统

Fig.1  $\text{Hg}^0$  breakthrough test system

## 2. 结果与讨论

### 2.1 石墨烯及复合物 XRD 表征

对制备得到的氧化石墨烯及其复合物晶相组成进

行了 XRD 测试, 测试结果如图 2 所示。

GO 在衍射角度为  $9.92^{\circ}$  时出现明显的衍射峰, 通过布拉格公式计算得到 GO 层间距为 0.89nm, 较之石墨 0.34nm 的层间距<sup>[11, 12]</sup>有所增加, 主要是由于在片层结构上引入了含氧官能团。对比分析 GO 复合物与 GO 的 XRD 图谱的差异可知, GO 复合物中在  $9.92^{\circ}$  的峰消失, 主要原因因为在超声处理过程中部分含氧官能团可能发生脱落<sup>[11]</sup>, 但该过程将有助于纳米 Ag 颗粒等官能修饰。GO-Ag, MGO-Ag 在衍射角度为  $38.2^{\circ}$ ,  $44.3^{\circ}$ ,  $64.5^{\circ}$ ,  $77.5^{\circ}$  和  $81.6^{\circ}$  处出现的 (1 1 1), (2 0 0), (2 2 0), (3 1 1) 以及 (2 2 2) 不同晶面主要为立方纳米 Ag 颗粒, 表明纳米银颗粒成功在 GO 表面修饰。同时在 MGO 和 MGO-Ag 的 XRD 谱图中出现了立方相  $\gamma\text{-Fe}_2\text{O}_3$  以及  $\text{Fe}_3\text{O}_4$ , 表明通过共沉淀法成功制备得到磁性氧化石墨烯复合物。

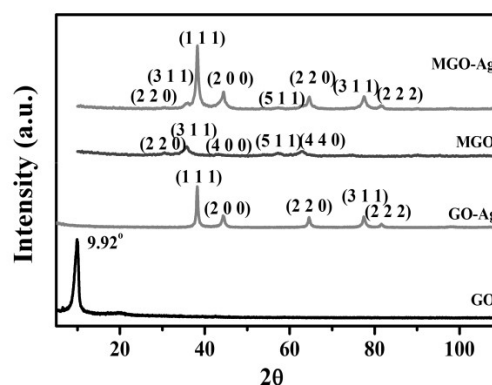


图 2.GO 及其复合物物相分析

Fig.2 phase analysis of GO and its composites

### 2.2 石墨烯及复合物 SEM/TEM

通过 SEM 及 TEM 对 GO 及其复合物微观形貌进行了表征, 结果表明 GO(图 3-a)呈现为表面光滑的单片层结构, 片层结构存在一定的褶皱不完全在一个平面上, 可能原因是当材料尺寸足够小减小到单层原子或少层原子, 且在表面悬挂官能团时, 导致材料出现一定的褶皱。

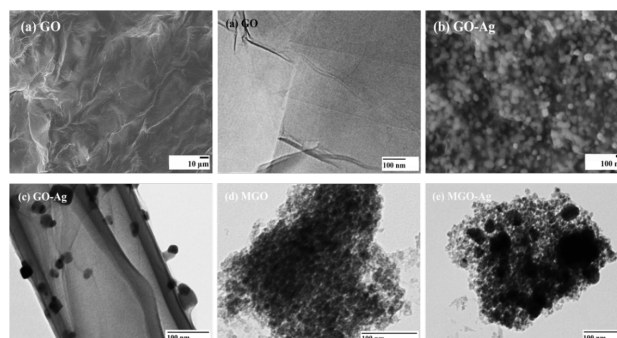




图 3. GO 及复合物微观形貌表征

Fig.3 micro-morphologies of GO and its composites

对 GO-Ag(图 3-b/c)的微观形貌观测表明, 纳米银颗粒在 GO 表面均匀分布, Ag 颗粒大小约 50nm, MGO(图 3-d)的微观形貌表明, 通过共沉淀法成功将磁性纳米 Fe 颗粒在 GO 表面修饰, 且磁性铁颗粒均匀分布, 颗粒大小约为 10nm; 对 MGO-Ag 微观形貌测试结果表明, 纳米 Fe 和 Ag 颗粒在 GO 表面成功修饰, 且 Ag 和 Fe 的修饰对各自形貌特征基本没有影响。

### 2.3 复合吸附剂 XPS 表征

对 GO 及其复合物 XPS 表征结果如图 4 所示。其中 GO 的 C1s 谱(a)和 GO-Ag 的 C1s 谱(b)通过拟合后表明, GO 中的 C 主要以 284.6 eV (C=C/C-C), 285.5 eV (C-OH), 286.9 eV (C-O-C), 287.8 eV (C=O) 以及 288.9 eV (COOH)等 5 种形式存在, 表明含氧官能团成功插层到单层 G 表面。

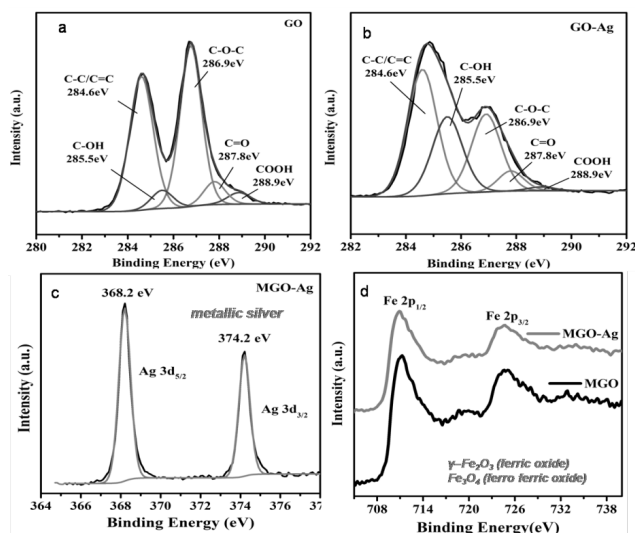


图 4. GO 及其复合物 XPS 测试 C(a, b)、Ag(c)、和 Fe(d)

Fig.4 XPS analysis of GO and its composites, C(a, b)、Ag(c)、and Fe(d)

而 GO-Ag 和 GO 的碳谱结果表明, 纳米 Ag 颗粒修饰之后的 GO 样品中 C 的存在形态并没有发生很大变化, 但在碳的衍射图谱强度上存在一定的变化。而在对 GO 表面进行 Ag 修饰后, 在 368.2 eV 和 374.2 eV 处出现了 Ag 3d<sub>5/2</sub> 和 Ag 3d<sub>3/2</sub> 的衍射峰(c), 与文献<sup>[13, 14]</sup>中报道的金属银的结合能一致。MGO 和 MGO-Ag 中 Fe 2p<sub>3/2</sub> 在结合能为 718 eV 处出现小峰(d), 表明  $\gamma$ -Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 和立方 Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub> 在 GO 表面共存, 磁性颗粒成功在 GO 表面修饰。所有 XPS 检测结果均表明, GO 复合物及表面修饰金属被成功合成。

### 2.4 复合吸附剂磁滞回线表征

对 MGO 及 MGO-Ag 的磁特性测试结果表明(图 5), MGO 和 MGO-Ag 表现出超强的顺磁特性, 饱和磁化强度分别为 14.9 emu/g (MGO-Ag)和 13.4 emu/g (MGO); 对比 MGO 和 MGO-Ag 的磁性可知, MGO-Ag 的饱和磁化强度略高于 MGO, 极有可能是由于 Fe 和 Ag 纳米颗粒之间偶极相互作用造成。磁性颗粒在吸附剂表面的成功负载表明吸附剂具有超强磁性, 在使用后能有效实现其与飞灰的分离。

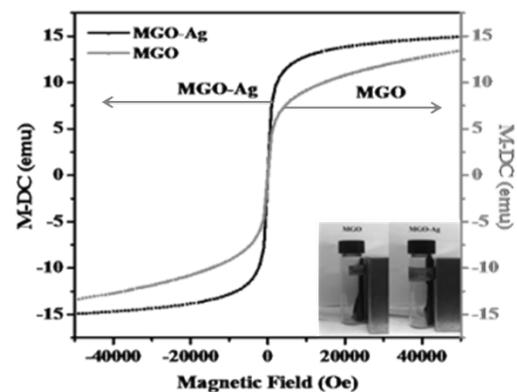


图 5. MGO 和 MGO-Ag 磁滞回线

Fig. 5 magnetic hysteresis loops of MGO and MGO-Ag

### 2.5 GO 及复合物脱汞的实验研究

#### 2.5.1 GO 脱汞特性

对原始 GO 样品对汞的吸附性能进行测试结果表明(图 6), GO 样品在小于 150°C 条件下表现出对汞较好的吸附特性, 当温度小于 50°C 时候, 对汞的吸附性能达到 50%; 当温度在 100°C 到 150°C 之间时, GO 对汞的吸附性能达到 95%; 但当温度继续升高到大于 200°C 时, GO 样品完全丧失对汞的吸附性能。

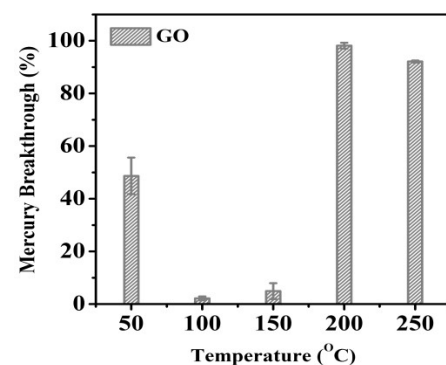


图 6. GO 对汞的穿透特性

Fig. 6 Hg<sup>0</sup> breakthrough on GO

对 GO 样品的热重分析结果如图 7 所示, 结果表明在温升过程中, GO 的失重主要表现在 3 个区间, 当温度小于 50°C 时, GO 表面吸附水丢失, 而此部分吸附水对汞的吸附有一定的抑制作用<sup>[15]</sup>, 因此当此部分吸附水脱附之后, GO 表面会暴露出更多活性位从

而对汞有良好的吸附效果,即表现为在 100°C-150°C 之间较强的对汞的吸附能力<sup>[16]</sup>,同时 GO 表面含氧官能团如-OH, 或者-COOH 等都对汞有一定的吸附作用;当温度继续升高时,GO 表面含氧官能团将逐渐丢失,从而完全丧失了对汞的吸附能力。

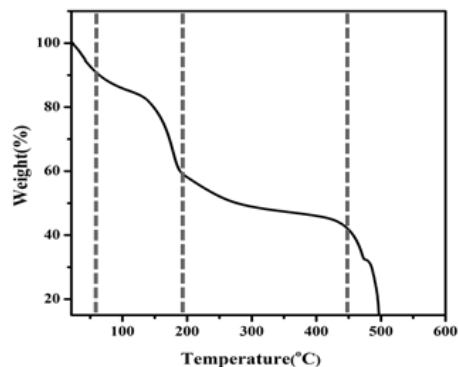


图 7. GO 热重曲线

Fig.7 thermogravimetric analysis of GO

### 2.5.2 GO 复合物脱汞

对 GO 复合物脱汞性能测试结果表明(图 8),GO 表面进行纳米 Ag 或者纳米 Fe 颗粒的修饰对汞均吸附均有明显的促进作用,纳米 Ag 颗粒修饰后 GO 对汞强的吸附作用主要源于 Ag-Hg 合金的作用<sup>[17-20]</sup>,同时 Fe 和 Ag 的在 GO 表面的共同修饰对提升吸附剂吸附性能效果最明显,这可能是由于 Ag-Hg 合金作用以及  $Hg^0$  在磁性氧化铁上特殊活性位的化学吸附及汞其效应造成的<sup>[20-22]</sup>。当温度在 50°C 时, MGO 对汞的穿透性能约为 50%,而 GO-Ag 和 MGO-Ag 则对汞表现出 100% 的吸附作用;当温度在 100°C 至 150°C 时,所有样品对汞都表现出优异的吸附性能;当温度在 200°C 时,GO 样品已完全失去对汞的吸附能力,而 GO-Ag 和 MGO 样品对汞的吸附性能开始逐渐丧失,汞的穿透率达到 40% 左右,当温度继续升高至 250°C 时,所有样品逐渐失去对汞的吸附能力。

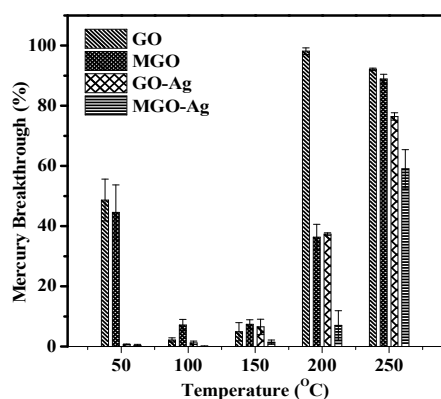


图 8. GO 及其复合物对汞的穿透特性曲线

Fig.8  $Hg^0$  breakthrough on GO and its composites

### 2.5.3 模拟烟气条件下吸附剂对汞吸附性能测试

对于含磁性颗粒其对汞吸附性能最优的 MGO-Ag 样品在模拟烟气条件下进行测试,测试结果表明, MGO-Ag 表现出快速的吸附能力,在 100-200°C 下 15mg 吸附剂在 5min 吸附量约 4.5ppm,较之 Ag 修饰菱沸石(0.14 $\mu$ g/g)和 Ag 修饰磁性沸石(0.03 $\mu$ g/g)性能表现出明显优异性<sup>[17, 23]</sup>。MGO-Ag 在 100-150°C 条件下对汞的吸附能力达到 60 $\mu$ g/g (w/w), 这比文献中报道的飞灰(135°C 时, 10-30 $\mu$ g/g)<sup>[24]</sup> 和磁性银修饰沸石 (150°C 时, 13.3-40 $\mu$ g/g)<sup>[18]</sup>性能优异。

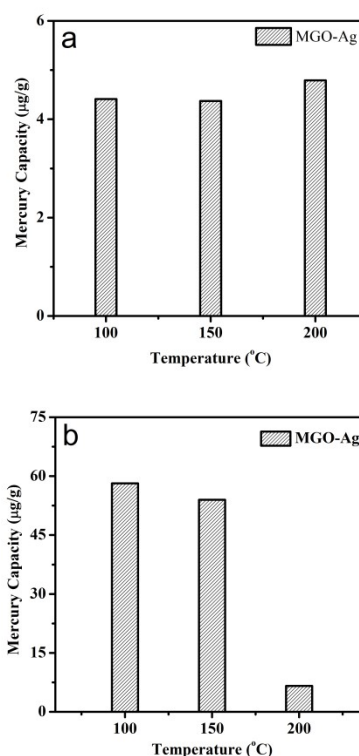


图 9. MGO-Ag 在模拟烟气条件下不同温度下 5min(a)和 30min(b)

对汞的吸附能力测试测试结果;模拟烟气组分

4%O<sub>2</sub>+12%CO<sub>2</sub>+400ppmSO<sub>2</sub>+300ppmNO+75 $\mu$ g/gHg 蒸气+15 mg 吸附剂

Fig. 9 Hg adsorption on MGO-Ag on simulated flue gas under different temperature (a-5min;b-30min);Components of flue gas:

4%O<sub>2</sub>+12%CO<sub>2</sub>+400ppmSO<sub>2</sub>+300ppmNO+75 $\mu$ g/gHg vapor +15mg adsorbents

### 2.5.4 吸附剂循环特性测试

为了探究复合吸附剂循环再生特性,对 MGO-Ag 开展了连续 5 次吸附(200°C)和脱附(370°C)实验研究,吸附剂循环过程中对汞的吸附性能结果如图 10 所示,结果表明 MGO-Ag 连续 5 次吸附和脱

附后, 吸附剂对汞的吸附性能几乎无变化, 完全没有丧失对汞的吸附能力。此研究结果表明, MGO-Ag 吸附剂具有良好的再生循环特性, 在实际工业应用中具有巨大的利用潜能。

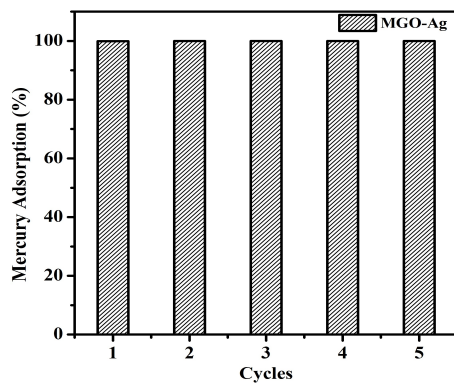


图 10.MGO-Ag 对汞吸附吸附的循环特性

Fig.10 cyclic performance of MGO-Ag on  $Hg^0$  adsorption

### 3. 结论

通过化学方法制备石墨烯基磁性材料, 并运用于燃煤烟气中汞吸附, 并考察了吸附剂循环再生的可行性, 得到了如下结论:

- (1)四种石墨烯基吸附剂可被成功合成与表征;
- (2)GO 原样在 100-150℃时对  $Hg^0$  表现出优异的吸附性能, Ag-NPs 修饰 GO 能有效促进吸附剂对汞的吸附, MGO-Ag 复合吸附剂对汞的吸附能力最佳;
- (3)MGO-Ag 在 150℃-200℃时表现出优异的汞吸附能力, 在反复循环之后吸附性能几乎不变;
- (4)以 MGO-Ag 为代表的可再生磁性石墨烯基复合吸附剂在中低温条件下对  $Hg^0$  具有优异的吸附性能, 具有良好的工业应用前景。

### 参考文献:

[1] Pacyna E G, Pacyna J M, Steenhuisen F, et al. Global Anthropogenic Mercury Emission Inventory for 2000 [J]. Atmospheric Environment, 2006, 40(22):4048-4063

[2] Wang S, Zhang L, Li G, et al. Mercury Emission and Speciation of Coal-Fired Power Plants in China [J]. Atmospheric Chemistry and Physics, 2010, 10(3):1183-1192

[3] Sasmaz E, Kirchofer A, Jew A D, et al. Mercury Chemistry on Brominated Activated Carbon [J]. Fuel, 2012, 99:188-196

[4] Baltrus J P, Granite E J, Rupp E C, et al. Effect of Palladium Dispersion on the Capture of Toxic Components from Fuel Gas by Palladium-Alumina Sorbents [J]. Fuel, 2011, 90(5):1992-1998

[5] Wang S, Hao J. Air quality Management in China: Issues, Challenges, and Options [J]. Journal of Environmental Sciences, 2012, 24(1):2-13

[6] Wu Y, Wang S, Streets D G, et al. Trends in Anthropogenic Mercury Emissions in China from 1995 to 2003 [J]. Environmental Science & Technology, 2006, 40(17):5312-5318

[7] Presto A A, Granite E J. Survey of Catalysts for Oxidation of Mercury in Flue Gas [J]. Environmental Science & Technology, 2006, 40(18):5601-5609

[8] Shen J, Hu Y, Shi M, et al. One Step Synthesis of Graphene Oxide-Magnetic Nanoparticle Composite [J]. The Journal of Physics Chemistry C, 2010,

114(3):1498-1503

[9] Tang X Z, Li X, Cao Z, et al. Synthesis of Graphene Decorated with Silver Nanoparticles by Simultaneous Reduction of Graphene Oxide and Silver Ions with Glucose [J]. Carbon., 2013, 59:93-99

[10] Kassae M Z, Motamedi E, Majdi M. Magnetic  $Fe_3O_4$ -Graphene Oxide/Polystyrene: Fabrication and Characterization of a Promising Nanocomposite [J]. Chemical Engineering Journal, 2011, 172(1):540-549

[11] Liu L, Liu J, Wang Y, et al. Facile Synthesis of Monodispersed Silver Nanoparticles on Graphene Oxide Sheets with Enhanced Antibacterial Activity [J]. New Journal Of Chemistry, 2011, 35(7):1418

[12] Fu Y, Wang J, Liu Q, et al. Water-Dispersible Magnetic Nanoparticle-Graphene Oxide Composites for Selenium Removal [J]. Carbon, 2014, 77:710-721

[13] Weaver J F, Hoflund G B. Surface Characterization Study of the Thermal Decomposition of  $Ag_2O$ . Chemistry Of Materials [J]. 1994, 6(10):1693-1699

[14] Heister K, Zharnikov M, Grunze M. Adsorption of Alkanethiols and Biphenylthiols on Au and Ag Substrates: A High-Resolution X-Ray Photoelectron Spectroscopy Study [J]. The Journal of Physics Chemistry B. 2001, 105(19):4058-4061

[15] Li Y H, Lee C W, Gullett B K. The Effect of Activated Carbon Surface Moisture on Low Temperature Mercury Adsorption [J]. Carbon., 2002, 40(1):65-72

[16] Li Y H, Lee C W, Gullett B K. Importance of

Activated Carbon's Oxygen Surface Functional Groups on Elemental Mercury Adsorption [J]. Fuel, 2003, 82(4):451-457

[17] Liu Y, Kelly D J A, Yang H, et al. Novel Regenerable Sorbent for Mercury Capture from Flue Gases of Coal-Fired Power Plant [J]. Environmental Science & Technology, 2008, 42(16):6205-6210

[18] Dong J, Xu Z, Kuznicki Z M. Magnetic Multi-Functional Nano Composites for Environmental Applications [J]. Advanced Functional Materials, 2009, 19(8):1268-1275

[19] Luo G, Yao H, Xu M, et al. Carbon Nanotube-Silver Composite for Mercury Capture and Analysis [J]. Energy & Fuels, 2010, 24(1):419-426

[20] Wilcox J, Rupp E, Ying S C, et al. Mercury Adsorption and Oxidation in Coal Combustion and Gasification Processes [J]. International Journal Of Coal

Geology, 2012, 90-91:4-20

[21] Granite E J, Pennline H W, Hargis R A, Novel Sorbents for Mercury Removal from Flue Gas [J]. Industrial & Engineering Chemistry Research, 2000, 39(4):1020-1029

[22] Wu S, Oya N, Ozaki M, et al. Development of Iron Oxide Sorbents for  $Hg^0$  Removal from Coal Derived Fuel Gas: Sulfidation Characteristics of Iron Oxide Sorbents and Activity for COS Formation during  $Hg^0$  Removal [J]. Fuel, 2007, 86(17-18):2857-2863

[23] Dong J, Xu Z, Kuznicki S M. Mercury Removal from Flue Gases by Novel Regenerable Magnetic Nanocomposite Sorbents [J]. Advan. Funct. Mater, 2009, 19:1268-1275

[24] Carey T R, Richardson C F. Assessing Sorbent Injection Mercury Control Effectiveness in Flue Gas Streams [J]. Environmental Progress, 2004, 19(3):167-174